

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2001年1月11日 (11.01.2001)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 01/02316 A1

- (51) 国際特許分類: C03C 27/12 (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 積水化学工業株式会社 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒530-8565 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号 Osaka (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/04383 (72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 中嶋 稔 (NAKAJIMA, Minoru) [JP/JP]; 〒528-0208 滋賀県甲賀郡土山町黒川1561-1 Shiga (JP). 三宮伊成 (SANNOMIYA, Isei) [JP/JP]; 〒520-3333 滋賀県甲賀郡甲南町希望ヶ丘2丁目26-13 Shiga (JP).
- (22) 国際出願日: 2000年7月3日 (03.07.2000)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
- | | | | |
|--------------|-------------------------|----|--|
| 特願平11/187627 | 1999年7月1日 (01.07.1999) | JP | (74) 代理人: 安富康男 (YASUTOMI, Yasuo); 〒532-0011 大阪府大阪市淀川区西中島5丁目4番20号 中央ビル Osaka (JP). |
| 特願平11/201747 | 1999年7月15日 (15.07.1999) | JP | |
| 特願平11/218796 | 1999年8月2日 (02.08.1999) | JP | |
| 特願平11/342172 | 1999年12月1日 (01.12.1999) | JP | |
| 特願平11/347675 | 1999年12月7日 (07.12.1999) | JP | (81) 指定国 (国内): AU, BR, CA, KR, MX, SG, US, ZA. |
| 特願2000/900 | 2000年1月6日 (06.01.2000) | JP | |
| 特願2000/4685 | 2000年1月13日 (13.01.2000) | JP | (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE). |
| 特願2000/26652 | 2000年2月3日 (03.02.2000) | JP | |

[続葉有]

(54) Title: INTERLAYER FOR LAMINATED GLASS AND LAMINATED GLASS

(54) 発明の名称: 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス

表面 FRONT SIDE



裏面 BACK SIDE



断面 SECTION



(57) Abstract: An interlayer for laminated glasses which does not cause the moire phenomenon even when having an embossed pattern with grooves and ridges disposed regularly or arranged at a regular interval, hence has satisfactory workability in cutting or laminating, and is highly effective in expelling air in preliminary press bonding; and a high-quality laminated glass produced with the same which is almost free from quality defects caused by residual bubbles. The interlayer is highly effective in air expelling even without strictly controlling the air expelling initiation temperature in the preliminary press bonding, is excellent in nonblocking properties during storage, handleability during glass processing, and productivity, and can be easily and efficiently used under various processing conditions. It comprises a thermoplastic resin sheet having on each side thereof an embossed pattern comprising grooves and ridges.

[続葉有]

WO 01/02316 A1

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

1

明細書

合わせガラス用中間膜及び合わせガラス

5 技術分野

本発明は、脱気性に優れた合わせガラス用中間膜及びそれを用いてなる合わせガラスに関する。

背景技術

- 10 ガラス板の間に、可塑化ポリビニルブチラル等の熱可塑性樹脂シートからなる中間膜を挟み、互いに接着させて一体化してなる合わせガラスは、自動車、航空機、建築物等の窓ガラスに広く使用されている。

- このような合わせガラスは、外部から衝撃が加えられると、ガラス部分は破損しても、ガラスの間に介在された中間膜は容易には破損せず、また、ガラスの破
15 損後においてもガラスは中間膜に貼着した状態であるので、その破片が飛散することが少ない。従って、車両や建築物の中の人体がガラスの破片により傷害をうけることを防止することができる。

- このような合わせガラスは、通常、ガラス板の間に中間膜を挟み、これをニッ
20 プロールに通して抜くか又はゴムバックに入れて減圧吸引し、ガラス板と中間膜との間に残留する空気を脱気しながら予備圧着し、次いで、オートクレーブ内で加熱加圧して、本圧着を行うことにより製造される。

- 上記中間膜には、透明性、接着性、耐貫通性、耐候性等の基本性能が良好であることのほかに、保管中に中間膜同士がブロッキングしないこと、ガラス板の間に中間膜を挟む際の取扱い作業性が良好であること、更に空気の巻き込みによる
25 気泡の発生をなくすために、予備圧着工程での脱気性が良好であること等が要求される。

上記のような要求を満たすために、通常、中間膜の両面には微細な凹部と凸部とからなる多数のエンボスが形成されている。凹部と凸部の形態としては、例えば、多数の凸部とこれらの凸部に対する多数の凹部とからなる各種の凹凸模様や、

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

3

与する方法」が開示されている。

しかし、上記の方法では、上記モアレ現象の出現はかなり改善されるものの、突起部より微細な凸部を有するエンボスを突起部表面及び突起部が位置しない表面にも付与しているので、微細な凸部を有するエンボスの凹部に空気溜まりが発生し、予備圧着工程での脱気性が不十分になるという問題点があった。

また、特表平 9-508078 号公報等には、凹凸形状において溝形状を規則的に配置し、そのパターンを各面で 25° 以上に、より好ましくは 90° にすることによってモアレを解消する中間膜が開示されている。

上述の方法において、モアレを解消するために 90° の刻線を付与した形状は、刻線 45° のロールを用いて熱転写されることが公知である。しかし、ロールの刻線の角度が大きくなるほど転写が容易でなくなる。一般には、転写流れに対して平行な縦刻線形状が最も容易に形成することができ、横刻線形状は転写の際に温度制御と高い圧力とを必要とする。

また、上述の方法では、予備圧着工程における脱気開始時の温度を厳密に制御しないと、合わせガラス構成体（例えば、ガラス／中間膜／ガラス）の周縁部が先にシールされる周縁部シール先行現象が発生し、構成体内部の脱気が更に不十分になるという問題点があった。

上記周縁部シール先行現象の発生を防止する手段として、溝形状の凹凸形状の大きさにより、脱気を開始するときの温度を管理し、脱気開始時の構成体圧着時にシール先行現象を防止したり、また、エンボスの粗さを大きくする方法もあるが、この場合、構成体の周縁部のシールを確実にを行うためには予備圧着工程における予備圧着温度を大幅に高める必要が生じるという問題点があった。

また、中間膜両面の刻線形状を成形性の観点から平行にすると、膜取扱い性、特に自着力においてその自着性が高くなるという問題点があった。

また、上記従来の中間膜は、保管中のブロッキング性、取扱い作業性及び予備圧着工程での脱気性は相当に改善されるが、例えば、面積が広い合わせガラスや曲率の大きい合わせガラスを製造する場合、又は、合わせガラスの生産性を上げる場合のように、厳しい条件のもとで脱気する場合には、脱気性及びシール性の点で十分に満足のものではないという問題点があった。

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

5

出し、次の本圧着工程へ移行する。

予備圧着工程において、減圧脱気方式を用いる場合、この工程は加熱－冷却サイクルからなるので、生産性を向上させるためには、ゴムバッグ内の初期温度を高くして、到達温度を低くすることが要求されている。

- 5 しかし、このゴムバッグ内の初期温度を高くしていくと、減圧時にガラス周辺部が先に潰れてしまい、中央部分の空気が抜けにくくなって残る。予備圧着工程で充分脱気できれば、残存する若干量の空気は、本圧着工程（例えば、 $130^{\circ}\text{C} \times 1.3 \text{ MPa} \times 1 \text{ 時間}$ ）で中間膜中に溶解させることができるので透明な合わせガラスを得ることができるが、残存空気が多いと、本圧着工程でも空気を溶解
- 10 できなくなり、発泡状態となってしまう。また、到達温度を低くしていくと、ガラス周辺部のシールが完全でない部分が残る、その部分に、本圧着工程時の高压空気が浸入して発泡状態となってしまう。

- 更に、ガラス／中間膜／ガラスの構成の合わせガラスでは、ガラスの曲げ精度や自重のかかり方等により、ガラス同士が合わさろうとする部分と離れようとする部分ができることも、上述の現象の要因となっている。
- 15

- 従来のエンボスの凹凸の形状としては、例えば、ランダムな形状（山と谷が交互に存在する）や、四角錐、三角錐を配置した規則的な形状等が用いられており、それ以外の形状としては、例えば、特表平9-508078号公報で、減圧脱気方式には、溝を用いて空気の抜け道を造る方法が、減圧時のシール先行を防止するの
- 20

- に有効であることが開示されている。
- しかし、この方法では、ゴムバッグ内の初期温度を高くすることができるものの、到達温度も同様に高くする必要があり、到達温度を低くすると本圧着時に空気の浸入を起こして発泡するという問題があった。即ち、従来のランダム形状のエンボスでは、初期温度 20°C で到達温度 85°C まで加熱すればよいものが、上記の方法では初期温度 35°C で到達温度は 95°C まで加熱しなければ発泡してしまい、溝又は山脈の深さ（高さ）、幅、ピッチの最適化を図っても、ある体積までエンボスを潰すことが必要なので、初期温度と到達温度とはほぼ平行に上方へ移動することとなり、脱気工程である予備圧着工程の生産性を向上させる効果が小さかった。
- 25

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

7

様を形成していることが好ましい。

本発明の第2の態様は、少なくとも片面の前記凹部は、底辺が連続した溝形状を有しており、かつ、同一面の前記凸部は、頭頂が平面形状を有している合わせガラス用中間膜である。

- 5 本発明の第2の態様においては、更に、凸部の頭頂の平面形状の上に微細な凹部及び凸部が形成されていることが好ましい。

本発明の第2の態様においては、頭頂の表面の粗さ R_a が $2.5\mu\text{m}$ 以上であることが好ましく、 $3.0\mu\text{m}$ 以上であることがより好ましい。

- 10 本発明の第2の態様においては、平面形状は、幅が凸部の配置間隔の20%以上であることが好ましい。

本発明の第2の態様においては、平面形状は、幅が一定であっても良く、幅がランダムであっても良い。

本発明の第3の態様は、少なくとも片面の前記凹部は、溝形状を有しており、前記溝形状の内に分断壁が形成されている合わせガラス用中間膜である。

- 15 本発明の第3の態様においては、分断壁は、高さが溝の深さより小さいことが好ましい。

本発明の第3の態様においては、分断壁は、等間隔で配置されていることが好ましい。

- 20 本発明の第4の態様は、少なくとも片面の前記凹部は、溝形状を有しており、同一水準になく、少なくとも片面は、表面粗さ(R_z)と陰原型の表面粗さ(R_{zv})との比が $R_{zv}/R_z \geq 0.25$ である合わせガラス用中間膜である。

本発明の第4の態様においては、溝形状は、線状に形成されていても良く、格子状に形成されていても良い。

- 25 本発明の第5の態様は、少なくとも片面の前記凹部は、連続した溝形状を有しており、同一面の前記凸部は、溝形状の分断部を有しており、かつ、前記分断部は、溝形状の底辺が前記凹部の連続した溝形状の底辺と同一水準にない合わせガラス用中間膜である。

本発明の第5の態様においては、凹部の溝形状と前記凸部の分断部の溝形状とが格子状を形成していても良く、ランダムな形状を形成していても良い。

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

9

る。

第7図は、実施例8及び実施例9で得られた合わせガラス用中間膜のエンボス模様（凹凸模様）を示す模式図である。

5 第8図は、実施例10及び実施例11で得られた合わせガラス用中間膜のエンボス模様（凹凸模様）を示す模式図である。

第9図は、比較例3で得られた合わせガラス用中間膜のエンボス模様（凹凸模様）を示す模式図である。

第10図は、実施例12及び13で得られた合わせガラス用中間膜のエンボスの模様（凹凸の模様）を示す模式図である。

10 第11図は、実施例14及び15で得られた合わせガラス用中間膜のエンボスの模様（凹凸の模様）を示す模式図である。

第12図は、実施例16で得られた合わせガラス用中間膜のエンボスの模様（凹凸の模様）を示す模式図である。

15 第13図は、比較例4で得られた合わせガラス用中間膜のエンボスの模様（凹凸の模様）を示す模式図である。

第7図～第13図において、aは、凸部の配置間隔（ピッチ）を示し、bは、凸部頭頂の平面形状の幅を示し、cは、凹部の幅を示す。

第14図は、実施例17及び実施例18で得られた合わせガラス用中間膜のエンボス模様（凹凸模様）を示す模式図である。

20 第15図は、実施例19及び実施例20で得られた合わせガラス用中間膜のエンボス模様（凹凸模様）を示す模式図である。

第16図は、比較例5で得られた合わせガラス用中間膜のエンボス模様（凹凸模様）を示す模式図である。

25 第17図は、R_zvの測定に用いる楔状の触針（先端幅1000μm、対面角90°）を示す斜視図である。

第18図は、本発明の第5の態様の合わせガラス用中間膜のエンボス模様を示す斜視図である。

第19図は、本発明の第5の態様の合わせガラス用中間膜のエンボス模様を示す平面図である。

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

11

テトラエチレングリコールジ-2-エチルブチレート、ジエチレングリコールジカプリエート、トリエチレングリコールジカプリエート等が挙げられる。

本発明においては、ポリビニルアセタール樹脂 100 重量部に対して、これら可塑剤の添加量は 20～60 重量部の範囲内であるのが好ましい。

- 5 また、本発明の中間膜は、必要に応じて、熱安定剤、紫外線吸収剤、接着力調整剤等の各種添加剤を含有してもよい。

上記熱可塑性樹脂シートの膜厚は、合わせガラスに必要とされる耐貫通性等を考慮して適宜決定されれば良く、特に限定されるものではないが、従来の中間膜と同様に、0.2～2mmであることが好ましい。

- 10 本発明の中間膜においては、上記熱可塑性樹脂シートの両面に凹部と凸部とからなるエンボスが形成されている。

上記エンボスの模様としては本発明の各態様の条件に反しない限り特に限定されず、多数の凸部とこれらの凸部に対する凹部とからなる各種の凹凸模様が挙げられる。これらの凹凸模様は規則的に分布していてもよく、不規則に分布してい

- 15 てもよいが、規則的に分布していることが好ましい。

上記凸部の高さは、全て同じであっても異なってもよく、上記凸部に対する凹部の深さも、全て同じであっても異なってもよい。

上記凸部の形状としては本発明の各態様の条件に反しない限り特に限定されず、三角錐、四角錐、円錐等の錐体；截頭三角錐、截頭四角錐、截頭円錐等の截頭錐
20 体；頭部が山型や半球状である擬錐体等が挙げられる。上記凹部の形状としては、上記凸部に対応したものが挙げられる。

上記エンボスを形成する方法としては、エンボスロール法、カレンダーロール法、異形押出法、メルトフラクチャーを利用した押出リップエンボス法等が挙げ
25 られる。なかでも、定量的に一定の微細な凹部と凸部とからなるエンボスが得ら

- れる点で、エンボスロール法が好ましい。

上記エンボスロール法で用いられるエンボスロールとしては、例えば、金属ロール表面に酸化アルミニウムや酸化珪素等の研削材を用いてブラスト処理を行い、次いで表面の過大ピークを減少させるためにバーチカル研削等を用いてラッピングを行うことにより、ロール表面に微細なエンボス模様（凹凸模様）を形成した

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

13

の面のエンボスの配置間隔とを異なるように形成することにより、エンボスの配置や間隔が比較的に規則的な場合であっても、上記モアレ現象の出現を効果的に抑制することができる。

一般的に、モアレ現象の出現は、中間膜の両面のエンボスの配置や間隔が同等に近いほど起こり易い。従って、一方の面のエンボスの配置間隔と他方の面のエンボスの配置間隔とを異なるように形成すること、即ち、一方の面のエンボスの配置間隔と他方の面のエンボスの配置間隔とに意識的に差を設けることにより、各面のエンボスの配置や間隔が比較的に規則的であってもモアレ現象の出現を効果的に抑制することが可能となる。

- 10 本発明の第1の態様においては、少なくとも片面の凹部が連続するように形成されていることが好ましい。

中間膜の少なくとも片面のエンボスの凹部を連続したものとすることにより、エンボスの凹部は連通し、予備圧着工程での脱気性を著しく向上させることができるので、得られる合わせガラスは、気泡の発生による品質不良が殆ど生じない高品質のものとなる。更に、中間膜の少なくとも片面の凹部の底辺が連続するよう

- 15 形成されていることがより好ましい。

本発明の第1の態様においては、中間膜の一方の面のエンボスの配置間隔が他方の面のエンボスの配置間隔に対し1.25倍以上となるように形成されていることが好ましい。他方の面のエンボスの配置間隔に対する一方の面のエンボスの配置間隔が1.25未満であると、モアレ現象の出現を抑制する効果が不充分となることがある。より好ましくは1.3倍以上である。

- 20 本発明の第1の態様においては、また、一方の面のエンボスの配置間隔 (L_1) と、他方の面のエンボスの配置間隔 (L_2) とが、 $(L_1) < (L_2)$ の関係にあり、一方の面の凸部の配置位置の前後 ($L_1 \times 0.25$) の範囲内に、他方の面の凸部が存在する割合は、一方の面の凸部の数の50%以下であることが好ましい。凸部が上記の配置条件を満たす場合、同様に、凹部も上記の配置条件を満たすことになる。即ち、一方の面の凹部の配置位置の前後 ($L_1 \times 0.25$) の範囲内に、他方の面の凹部が存在する割合は、一方の面の凹部の数の50%以下であることが好ましい。なお、本明細書において、凸部又は凹部の配置

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

15

しており、同一面の凸部は、頭頂が平面形状を有している合わせガラス用中間膜である。

本発明の第2の態様では、少なくとも片面の凹部を底辺が連続した溝形状とすることにより、著しい脱気性向上効果を得ることができる。

- 5 また、本発明の第2の態様においては、凸部の頭頂を平面形状体とする。上記凸部の頭頂の面積が広いほどエンボス凸部の体積が大きくなるので、エンボスの平均表面粗さを相対的に小さくすることができ、予備圧着工程における合わせガラス構成体の上記周縁部シール先行現象の発生を効果的に抑制することが可能となる。また、中間膜は予備圧着工程における合わせガラス構成体の周縁部シール
- 10 に必要な通常の温度で十分に流動状態となり得るので、通常の温度で十分に周縁部シールを行うには、エンボスの平均表面粗さが $100\mu\text{m}$ 以下であるのが好ましく、 $70\mu\text{m}$ 以下であるのがより好ましい。

- 本発明の第2の態様では、少なくとも片面の凹部は、底辺が連続した溝形状を有しており、同一面の凸部は、頭頂が平面形状を有しているので、凸部の延長方
- 15 向に対し直交する断面が台形状を有しており、凸部の頭頂の面積が大きくなり、それに伴って凸部の体積も大きくなり、予備圧着工程における合わせガラス構成体の周縁部シール先行現象の発生を効果的に抑制することができる。従って、予備圧着工程において合わせガラス構成体の中央部近傍に存在する空気も効果的に脱気され得る。

- 20 上記凸部は、更に、頭頂の平面形状の上に微細な凹部及び凸部が形成されてなることが好ましい。凸部の頭頂を平面にすることにより、中間膜の自着性が高くなることもあるが、該平面部により微細な凹部及び凸部を形成することにより、得られる中間膜の自着性を抑えることができ、膜取扱い性が良好となる。

- 上記頭頂の表面の粗さは、 R_a が $2.5\mu\text{m}$ 以上であることが好ましい。 R_a
- 25 が $2.5\mu\text{m}$ 以上であれば、中間膜同士を合わせて定法にて保管しても、中間膜同士の接触面積を小さくすることができるので、自着性が問題のないレベルとなる。より好ましくは、 R_a が $3.0\mu\text{m}$ 以上である。

図7は後述する本発明の実施例8及び実施例9で得られた中間膜のエンボス模様（凹凸模様）を示す模式図であるが、図7において、 a はエンボス凸部の配置

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

17

上記分断壁の高さは、溝の深さより小さいことが好ましい。上記分断壁の高さが、溝形状の深さより大きいと脱気及びシールが不十分となる場合がある。

上記分断壁は、等間隔で配置されていることが好ましい。上記分断壁が、等間隔で配置されていないと脱気が効率よく進行しないことがある。

- 5 本発明の第3の態様においては、その一方の面の凹凸形状の間隔に対して他方の面の凹凸形状の間隔が同一でないことが好ましい。同一であるとモアレ現象が生じやすい。

- 10 本発明の第4の形態は、少なくとも片面の上記凹部は、溝形状を有しており、同一水準になく、少なくとも片面は、表面粗さ (R_z) と陰原型の表面粗さ (R_{zv}) との比が $R_{zv} / R_z \geq 0.25$ である合わせガラス用中間膜である。

- 15 上記 R_z は、少なくとも片面のエンボスの表面粗さを表し、円錐状の触針（先端曲率半径 $5 \mu\text{m}$ 、頂角 90° ）を用い、JIS B 0601に基づいて測定される10点平均粗さであり、上記 R_{zv} は、少なくとも片面のエンボスの陰原型の表面粗さを表し、図17に示す楔状の触針（先端幅 $1000 \mu\text{m}$ 、対面角 90° ）を用い、この触針を先端幅に対して直交する方向に移動させ、JIS B 0601に基づいて測定される10点平均粗さである。

なお、本明細書において、「同一水準になく」とは、溝の深さが均一ではないことを意味する。

- 20 上記 R_z は、よく知られた通常の10点平均粗さを意味するもので、一般に、デジタル形の触針電気式表面粗さ測定器によって測定される。

また、上記 R_{zv} も、一般に、デジタル形の触針電気式表面粗さ測定器によって測定される。

- 25 上記 R_{zv} は、換言すれば、シート表面のエンボスの凸部を凹部とし、かつ、凹部を凸部とした場合について、楔状の触針（先端幅 $1000 \mu\text{m}$ ）を用いて測定される10点平均粗さといえることができる。ここで、楔状の触針の先端幅を $1000 \mu\text{m}$ としたのは、エンボスの凸部及び凹部の間隔（通常は $200 \sim 1000 \mu\text{m}$ ）を考慮したもので、このような先端幅 $1000 \mu\text{m}$ の触針を用いることにより、エンボスの凹部のうち、特に深い凹部の形状変化が測定される。

上記 R_{zv} は、エンボスの凹部の水準を表すパラメーターとなるもので、脱気

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

19

に得ることが可能となる。

図 18 は本発明の第 5 の態様の合わせガラス用中間膜のエンボス模様を示す斜視図であり、図 19 はその平面図である。

5 本発明の第 5 の態様においては、凹部の溝形状 1 と凸部の分断部 2 の溝形状とは、格子状を形成していても良いし、ランダムな形状を形成していても良いが、格子状であることがより好ましい。

また、本発明の第 5 の態様においては、凸部の分断部の溝の深さ 3 は、一定の深さであっても良いし、ランダムな深さであっても良いが、一定の深さであることがより好ましい。

10 本発明の第 5 の態様においては、特定の条件を満たすエンボスが中間膜の両面に形成されていることが好ましいが、中間膜の一方の面のみに特定の条件を満たすエンボスが形成されており、他方の面には従来の通常のエンボスが形成されているものであっても良い。

15 本発明の第 5 の態様においては、少なくとも片面の凹部が連続した溝形状を有しているので、合わせガラス加工時の予備圧着工程において、熱や加圧によりエンボスの凹凸が潰れても、凹部の連続した溝形状は最終段階まで残る。従って、充分な脱気を行うことができる。

20 また、本発明の第 5 の態様においては、凹部に対する凸部が分断部を有しており、しかも、この分断部の溝形状の底辺が凹部の連続した溝形状の底辺と同一水準にないので、凸部の分断部の溝形状を制御することにより、合わせガラス加工時のシール性を優れたものとすることができる。更に、凸部の分断部の溝形状を制御することにより、多様なユーザーの多様な加工条件に簡便かつ効率的に対応することができる。

25 本発明の第 6 の態様は、少なくとも片面に凹溝が形成されており、該凹溝と熱可塑性樹脂シートの押出方向との角度が 25° 未満である合わせガラス用中間膜である。

本発明の第 6 の態様において用いられる熱可塑性樹脂シートに形成された凹溝と、熱可塑性樹脂シートの押出方向とのなす角度が大きすぎると、特に抜き脱気法により予備圧着を行い合わせガラスを製造する際に、合わせガラスに発泡（気

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

21

山脈に対して直角に脱気した場合であっても空気の通路を確保でき、そのため、山脈に直角方向に脱気しても、空気を堰き止めることがないので空気溜まりが発生しない。

更に、近年の合わせガラスの製造方法によれば、中間膜の巻き流れ方向（即ち、
5 一般的には、熱可塑性樹脂シートの押出方向）に沿って合わせガラスを構成し、巻き流れ方向に沿って抜き脱気をすることが多いので、中間膜の巻き流れ方向に沿って凹溝を付与した方が、予備圧着工程の際、中間膜の周辺部のシール性が優れたものとなる。

また、合わせガラスの積層体を予備圧着する場合、多くの加工メーカーでは、
10 ガラスの湾曲による割れを防止するために、積層体をマルチロールに挿入する際の初期スピードと離脱前のスピードとを通常のスピードより、明らかに遅くして通すので、積層体の前後のシール状態は、積層体の前後に当たるエンボスの粗さや凹溝が大きくても十分にシールすることができ、積層体の側端に凹溝がなければ側端のシール性も問題とならない。

15 本発明の第7の態様は、少なくとも片面の凹部が、溝形状を有しており、該溝形状は、断面積が一定であり、かつ、最大溝深さに対し5%以上の深さをもつ溝が形成された深さ分布を有する合わせガラス用中間膜である。

本発明の第7の態様においては、少なくとも片面の凹部が、溝形状を有しており、該溝形状の断面積を一定に保ちつつ、溝の深さを部分的に浅くすることにより、
20 り、最大溝深さに対し5%以上の深さをもつ溝が形成された深さ分布を有するので、減圧脱気方式における脱気工程において、減圧開始時には空気の通り道が確保され、昇温時には浅い部分がガラスと密着しやすくなりシール性が向上する。

上記最大溝深さに対し5%以上の深さをもつ溝は、10mm以下の配置間隔（ピッチ）で形成されていることが好ましい。このピッチが10mmを超えると、
25 脱気工程において、合わせガラスの周辺部分の発泡が問題となることがある。より好ましくは、2mm以下の配置間隔である。

本発明の第7の態様においては、溝形状が、中間膜の流れ方向に付与されていることが好ましい。なお、本明細書において、「流れ方向」とは、合わせガラスの生産ライン上を合わせガラス積層体が移動する方向を意味する。それにより、

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

23

限定されず、ガラス板／中間膜／ガラス板／中間膜／ガラス板等よりなる多層構造でもよい。

- 5 本発明の中間膜を用いて合わせガラスを製造する方法としては特に限定されず、通常の合わせガラスの製造方法と同様に、少なくとも一対のガラス間に中間膜を挟み、先ず予備圧着を行って脱気及び仮接着をした後、例えばオートクレーブ中で本圧着を行うことにより、所望の合わせガラスを得ることができる。

本発明の中間膜として、例えば、可塑化ポリビニルブチラール樹脂シートからなる中間膜を用いて合わせガラスを製造する場合、例えば、次のような手順で予備圧着と本圧着とを行えばよい。

- 10 予備圧着は、二枚の透明な無機ガラス板の間に中間膜を挟み、この積層体をニップロールに通し、例えば、圧力2～1000kPa、温度50～100℃の条件で扱いて脱気しながら予備圧着する方法（扱き脱気法）、又は、上記積層体を入れたゴムバックを排気系に接続して－40～－75kPaの真空（絶対圧力36～1kPa）に吸引減圧しながら温度を上げ、60～100℃で予備圧着する
15 方法（減圧脱気法）等により行われる。

予備圧着された積層体は、常法によりオートクレーブを用いるか、又は、プレスを用いて、温度120～150℃、圧力200～1500kPaの条件下で本圧着され、合わせガラスが製造される。

このようにして得られる合わせガラスもまた、本発明の1つである。

20

発明を実施するための最良の形態

以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。

（実施例1）

- 25 ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度1700、残存アセチル基1モル%、ブチラール化度65モル%）100重量部に対し、可塑剤としてトリエチレングリコールジ－2－エチルブチレート40重量部を添加混合し、この混合物を押出機により熔融混練し押出金型よりシート状に押出して、厚さ0.76mmのポリビニルブチラール樹脂シート（PVBシート）を得た。

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

25

る合わせガラス用中間膜を製造した。

図 1 に実施例 1 ～ 3 で得られた合わせガラス用中間膜の表面、裏面及び断面のエンボス模様（凹凸模様）を模式的に示した。

（比較例 1）

- 5 両方の彫刻ミル（マザーミル）のエンボスの配置間隔を $300\text{ }\mu\text{m}$ としたこと以外は実施例 1 の場合と同様にして、両面に刻線状のエンボス模様が規則的に形成され、かつ、両面のエンボスの配置間隔が同一である合わせガラス用中間膜を製造した。

- 10 図 2 に比較例 1 で得られた合わせガラス用中間膜の表面、裏面及び断面のエンボス模様（凹凸模様）を模式的に示した。

（実施例 4）

- 15 ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 1700、残存アセチル基 1 モル％、ブチラール化度 65 モル％）100 重量部に対し、可塑剤としてトリエチレングリコール—ジ—エチルブチレート（3GH）40 重量部を添加混合し、この混合物を押出機により熔融混練し押出金型よりシート状に押出して、厚さ 0.76 mm のポリビニルブチラール樹脂シート（PVB シート）を得た。

- 20 一対のエンボスロールのうち、一方の金属ロール表面に半球状のエンボス模様を有する彫刻ミル（マザーミル）を押し付け、金属ロールと彫刻ミルとを回転させることにより、彫刻ミルのエンボス模様を金属ロールに転写した。次いで、彫刻ミルをそのエンボス模様の配列単位で金属ロールの軸方向に順次移動させ、上記と同様の操作で、彫刻ミルのエンボス模様を金属ロールに転写して、半球状のエンボスが規則的に形成されたエンボスロールを作製した。なお、彫刻ミルのエンボスの配置間隔は $200\text{ }\mu\text{m}$ であった。

- 25 また、上記一対のエンボスロールのうち、他方の金属ロール表面に半球状のエンボス模様を有する彫刻ミル（マザーミル）を押し付け、金属ロールと彫刻ミルとを回転させることにより、彫刻ミルのエンボス模様を金属ロールに転写した。次いで、彫刻ミルをそのエンボス模様の配列単位で金属ロールの軸方向に順次移動させ、上記と同様の操作で、彫刻ミルのエンボス模様を金属ロールに転写して、半球状のエンボスが規則的に形成されたエンボスロールを作製した。なお、彫刻

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

27

状としたこと以外は実施例 4 の場合と同様にして、両面に刻線状のエンボスが規則的に形成され、かつ、両面のエンボスの配置間隔が同一である合わせガラス用中間膜を製造した。得られた中間膜の表面、裏面及び断面のエンボス模様を図 6 に示した。

- 5 実施例 1 ～ 7 及び比較例 1 及び 2 で得られた 9 種類の間膜について、それぞれの面のエンボスの平均表面粗さ (R_z) 及び平均配置間隔 (S_m) を以下の方法で測定した。結果を表 1 及び表 2 に示した。

〔 R_z の測定〕

- 10 デジタル型の触針電気式表面粗さ測定器 (商品名「SE-2000」、小坂研究所社製) により、円錐状の触針 (先端曲率半径 $5\ \mu\text{m}$ 、頂角 90°) を用い、JIS B 0601 に準拠して、中間膜のそれぞれの面のエンボスの 10 点平均表面粗さ { $R_z\ (\mu\text{m})$ } を測定した。

〔 S_m の測定〕

- 15 顕微鏡で観察して、中間膜のそれぞれの面のエンボスの平均配置間隔 { $S_m\ (\mu\text{m})$ } を測定した。

また、上記 9 種類の間膜について、モアレ現象の出現の有無を以下の方法で評価した。結果を表 1 及び表 2 に示した。

〔モアレ現象の出現の有無〕

- 20 中間膜をゆっくり連続的に移動させながら、目視で観察し、モアレ現象の出現の有無を確認した。

次いで、上記 9 種類の間膜のそれぞれを使用して、次の 2 つの方法 (抜き脱気法及び減圧脱気法) で予備圧着を行い、次いで本圧着を行って、9 種類の合わせガラスを作製した。

(a) 抜き脱気法

- 25 中間膜を二枚の透明なフロートガラス板 (縦 $30\ \text{cm}$ × 横 $30\ \text{cm}$ × 厚さ $3\ \text{mm}$) の間に挟み、はみ出た部分を切り取り、こうして得られた積層体を加熱オーブン中で、積層体の温度 (予備圧着温度) がそれぞれ 60°C 、 70°C 及び 80°C となるように加熱した後、ニップロール (エアーシリンダー圧力 $350\ \text{kPa}$ 、線速度 $10\ \text{m}/\text{分}$) に通して予備圧着を行った。

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

29

表 1

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例		
中間膜のエンボス	エンボスの模様	刻線状	刻線状	刻線状	刻線状		
	エンボスの配置	規則的	規則的	規則的	規則的		
	裏面	36.2	43.2	44.5	40.6		
	裏面	252.0	302.2	303.0	305.0		
	裏面	42.5	43.0	39.4	41.2		
		324.0	372.5	431.2	305.0		
モアレ現象の出現の有無		無し	無し	無し	有り		
予備圧着温度 (°C)	抜き脱気法	60	70	80	60	70	80
	減圧脱気法	60	80	100	60	80	100
合わせガラスのベークテスト (発泡枚数/100 枚)	抜き脱気法	0	1	0	2	0	0
	減圧脱気法	1	0	0	0	1	0

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

31

表1及び表2から明らかなように、本発明による実施例1～7の合わせガラス用中間膜は、いずれもモアレ現象の出現がなかった。これは、裁断時や合わせ加工時の作業性が良好であったことを示している。また、上記中間膜を用いて作製された実施例1～7の合わせガラスは、扱き脱気法における各予備圧着温度及び減圧脱気法における各予備圧着温度のいずれの場合についても、ベークテスト時の気泡による発泡枚数（不良枚数）が少なかった。これは、予備圧着工程における脱気性が優れていたことを示している。

これに対し、エンボスの配置間隔が同一（300 μm ）の二本の彫刻ミル（マザーミル）により作製された一対のエンボスロールを用いて製造された比較例1の合わせガラス用中間膜、及び、エンボス模様（刻線状）及びその配置間隔が同一（210 μm ）の二本の彫刻ミル（マザーミル）により作製された一対のエンボスロールを用いて製造された比較例2の合わせガラス用中間膜は、予備圧着工程での脱気性は優れていたものの、モアレ現象の出現が認められた。これは、裁断時や合わせ加工時の作業性が不良であったことを示している。

15 （実施例8）

熱可塑性樹脂シートとして「DXN膜」（ポリビニルブチラール樹脂シート、積水化学工業社製）を用いた。

20 三角形斜線型ミル（由利ロール社製）を用いて表面にミル加工を施した金属ロールと45～75のJIS硬度を有するゴムロールとからなる一対のロールを凹凸形状転写装置として用い、上記DXN膜をこの凹凸形状転写装置に通し、DXN膜の一方の面に底辺が連続した溝形状となるエンボス凹部を付与した。このときの転写条件は下記の条件であった。

DXN膜の温度：常温

ロール温度：130℃

25 線速：10m/分、

プレス線圧：500kPa

次いで、DXN膜の他方の面にも上記と同様の操作を施し、底辺が連続した溝形状を有するエンボス凹部と頭頂に平面形状を有するエンボス凸部とからなるエンボスが両面に刻線状の模様で規則的に形成された中間膜を得た。なお、得られ

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

33

膜を得た。図9に比較例で得られた中間膜のエンボス模様（凹凸模様）を模式的に示した。

実施例8～11及び比較例3で得られた5種類の中間膜のそれぞれについて、エンボスの平均表面粗さ（ R_z ）を実施例1と同じ方法で測定した。結果を表3

5 に示した。

また、上記5種類の中間膜のそれぞれを使用して、以下に示すように、減圧脱気法で予備圧着を行い、次いで本圧着を行って、5種類の合わせガラスを作製した。

〔減圧脱気法〕

10 中間膜を2枚の透明なフロートガラス板（縦30cm×横30cm×厚さ30cm）の間に挟み、はみ出た部分を切り取り、合わせガラス積層体を作製した。得られた合わせガラス積層体をゴムバッグに移した。ゴムバッグを吸引減圧系に接続し、外気加熱温度で加熱すると同時に -60 kPa （絶対圧力 16 kPa ）の減圧下で10分保持し、合わせガラス積層体の温度（予備圧着温度）が 70°C となるように加熱した後、大気圧に戻して予備圧着を終了した。なお、予備圧着時の脱気開始温度は、 40°C 、 50°C 及び 60°C の3条件で行った。

〔本圧着〕

上記方法で予備圧着された合わせガラス積層体をオートクレーブ内に入れ、温度 140°C 、圧力 1300 kPa の条件下で10分間保持した後、 50°C まで温度を下げ、大気圧に戻すことにより本圧着を終了して、合わせガラスを作製した。

上記で得られた5種類の合わせガラスのそれぞれのベークテストを実施例1と同じ方法で行って、予備圧着工程での脱気性を評価した。結果を表3に示した。

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

35

表 3 から明らかなように、本発明による実施例 8 ～ 11 の中間膜を用いて作製した合わせガラスは、減圧脱気法による予備圧着時の脱気開始温度が 40℃、50℃及び 60℃のいずれの場合でもベークテスト時の気泡による発泡枚数（不良枚数）が少なかった。これは、予備圧着工程において脱気開始温度を厳密に制御しなくとも、また、予備圧着温度を特に高めることなく通常の予備圧着温度（70℃）でも、優れた脱気性を発揮したことを示している。

これに対し、エンボス凸部の頭頂に平面形状を付与しなかった比較例 3 の中間膜を用いて作製した合わせガラスは、予備圧着工程における脱気開始温度が 50℃以上の場合、ベークテスト時の気泡による発泡枚数（不良枚数）が極めて多かった。これは、予備圧着工程において脱気開始温度を少なくとも 50℃未満に厳密に制御しないと、合わせガラス積層体の周縁部シール先行現象が発生し、合わせガラス積層体の中央部近傍に存在する空気を十分に脱気することができないことを示している。

（実施例 12 ～ 16）

15 〔合わせガラス用中間膜の作製〕

エンボス形状が付与できるように、種々のエンボスロールを用意した。熱可塑性樹脂シートとして、DXN 膜（ポリビニルブチラール樹脂シート、積水化学工業社製）を用意した。実施例 12 ～ 16 で用いた DXN 膜の Ra を表 4 に示した。

20 エンボスロールとゴムロールとからなる一対のロールを凹凸形状転写装置として用い、上記 DXN 膜をこの凹凸形状転写装置に通し、両面にエンボス形状を有する合わせガラス用中間膜を得た。このときの転写条件を、下記に示した。

DXN 膜の温度：常温

ロール温度：130℃

25 線速：10m/分

プレス線圧：500kPa

実施例 12 ～ 16 で得られた合わせガラス用中間膜のエンボスの形状（凹凸の形状）を表 4 に示した。

また、図 10 に、実施例 12 及び実施例 13 で得られた合わせガラス用中間膜

表 4

		実施例										比較例				
		12		13		14		15		16						
		刻線状	規則的、平行	刻線状	規則的、平行	刻線状	規則的、平行	刻線状	規則的、平行	刻線状	規則的、平行					
中間膜のエンボス	エンボスの模様															
	エンボスの分布															
	主凸部のピッチ (a : μm)	300		500		300		500		200		200				
	主凸部平面部の幅 (b : μm)	250		400		250		400		100		25				
	b/a (%)	83		83		80		83		50		12.5				
	主凹部の幅 (c : μm)	50		100		50		100		100		175				
	5 μm 触針による平均表面粗さ (Rz : μm)	42.5		40.5		45.2		41.2		50.2		55.6				
	1000 μm 触針による平均表面粗さ (Ra : μm)	4.1		3.5		2.7		2.0		2.0		0.5				
	自着力 (g/15cm)	350		420		570		980		650		2540				
	評価結果	減圧脱気法の条件	脱気開始温度 (°C)	40	50	60	40	50	60	40	50	60	40	50	60	
予備圧着温度 (°C)			70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	
合わせガラスのベークテスト (発泡枚数/100枚)		0	0	1	0	1	2	1	2	2	4	3	4	5	4	10

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

39

ト、積水化学工業社製）を用いた。

上記エンボスロールとゴムロールとを一对で用意し、エンボスロールを 130℃とし、上記熱可塑性樹脂シートを通し所定のエンボス形状を得た。

実施例 17 及び実施例 18 の合わせガラス用中間膜に形成されたエンボスの形状は図 14 に示したとおりであり、実施例 19 及び実施例 20 の合わせガラス用中間膜に形成されたエンボスの形状は図 15 に示したとおりであり、比較例 5 の合わせガラス用中間膜に形成されたエンボスの形状は図 16 に示したとおりであった。各エンボスの凸部の配置間隔、凹部の深さ、分断壁の配置間隔、及び、分断壁の高さは表 5 に示したとおりであった。

- 10 実施例 17～20 及び比較例 5 で得られた 5 種類の間膜のそれぞれについて、エンボスの平均表面粗さ（R_z）を実施例 1 と同じ方法で測定した。結果を表 5 に示した。

また、上記 5 種類の間膜のそれぞれを使用して、以下に示すように、減圧脱気法で予備圧着を行い、次いで本圧着を行って、5 種類の合わせガラスを作製した。

〔減圧脱気法〕

- 20 中間膜を二枚の透明なフロートガラス板（縦 30 cm×横 30 cm×厚さ 3 mm）の間に挟み、はみ出た部分を切り取り、得られた合わせガラス積層体をゴムバッグ内に移し、ゴムバッグを吸引減圧系に接続し、外気加熱温度で加熱すると同時に -60 kPa（絶対圧力 16 kPa）の減圧下で 10 分間保持し、合わせガラス積層体の温度（予備圧着温度）が一定の温度となるように加熱した後、大気圧に戻して予備圧着を終了した。上記予備圧着時の脱気開始温度は 50℃とし、予備圧着温度は 60℃、65℃及び 70℃の 3 条件下とした。

〔本圧着〕

- 25 上記方法で予備圧着された合わせガラス積層体をオートクレーブ内に入れ、温度 140℃、圧力 1300 kPa の条件下で 10 分間保持した後、50℃まで温度を下げ大気圧に戻すことにより本圧着を終了して、合わせガラスを作製した。

得られた 5 種類の合わせガラスに対して、実施例 1 と同じ方法でベークテストを行い、予備圧着工程での脱気性を評価した。結果を表 5 に示した。

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

41

を形成し、更にガラスビーズ（＃４６）を用いて１００ｋＰａの空気圧で約３０ｃｍの距離からブラスト処理を行って、エンボスロールを作製した。

一方、ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度１７００、残存アセチル基１モル％、ブチラール化度６５モル％）１００重量部に、可塑剤としてトリエチレングリコールジエチルブチレート４０重量部と、接着力調整剤として酢酸マグネシウム０．２重量部を混合し、この混合物を押出機により熔融混練し押出金型よりシート状に押出して、厚さ０．７６ｍｍのポリビニルブチラールシートを成形した。

上記一対のエンボスロール及びポリビニルブチラールシートを用い、常法により、ポリビニルブチラールシートの両面に、断面が三角形状の多数の凸条（直線状）と、これ等の凸条に対する多数の凹溝（直線状）とから構成された凹凸模様（規則的）が形成され、各凹溝が同一水準にない中間膜を製造した。この中間膜の含水率は０．４～０．５重量％に調整した。

（実施例２２）

金属ロール表面を彫刻ミル（ピラミッド型カップミル）によりミル加工を行って、金属ロール表面に四角錐からなる多数の凹部と、これ等の凹部に対する多数の凸部とから構成された凹凸模様（規則的）を形成し、更にガラスビーズ（＃２０）を用いて１００ｋＰａの空気圧で約３０ｃｍの距離からブラスト処理を行って、エンボスロールを作製した。

このエンボスロールを用いたこと以外は、実施例２１と同様にして、ポリビニルブチラールシートの両面に、四角錐からなる多数の凸部と、これ等の凸部に対する多数の凹部とから構成された凹凸模様（規則的）が形成され、各凹部は同一水準にない中間膜を製造した。この場合、互いに隣接する凸部との間の凹部は格子状の溝状に形成された。

（実施例２３）

金属ロール表面を彫刻ミル（波状の三角形斜線型カップミル）によりミル加工を行って、金属ロール表面に、断面が三角形状の多数の凹溝（波状）と、これ等の凹溝に対する多数の凸条（波状）とから構成された凹凸模様（不規則）を形成し、更にガラスビーズ（＃２０）を用いて１ｋｇの空気圧で約３０ｃｍの距離か

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

43

(a) 抜き脱気法

中間膜を二枚の透明なフロートガラス板（縦30cm×横30cm×厚さ2mmで中央に対して周辺が1mm湾曲しているガラス板）の間に挟み、はみ出た部分を切り取り、こうして得られた積層体を加熱オープン内で、積層体の温度（予備圧着温度）がそれぞれ60℃、70℃、80℃になるように加熱し、その後ニップロール（エアーシリンダー圧力350kPa、線速度10m/分）に通すことにより予備圧着を行った。

(b) 減圧脱気法

中間膜を二枚の透明なフロートガラス板（縦30cm×横30cm×厚さ2mmで中央に対して周辺が1mm湾曲しているガラス板）の間に挟み、はみ出た部分を切り取り、こうして得られた積層体をゴムバッグ内に移し、ゴムバッグを吸引減圧系に接続し、外気加熱温度で加熱すると同時に-60kPa（絶対圧力16kPa）の減圧下で10分間保持し、積層体の温度（予備圧着温度）がそれぞれ60℃、80℃、100℃になるように加熱し、その後、大気圧に戻して予備圧着を終了した。

上記（a）及び（b）の方法で得られた積層体を、それぞれオートクレーブ内で、温度140℃、圧力1.3MPaの条件下に10分間保持した後、50℃まで温度を下げ大気圧に戻すことにより本圧着を終了して、合わせガラスを作製した。

20

25

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

45

ロール温度：140℃

線速：10m/分、

プレス線圧：2500kPa

次に、上記三角形斜線型ミルと逆向きの三角形斜線型ミル（75mesh、80depth、由利ロール社製）を用いて表面にミル加工を施した金属ロールと45～75のJIS硬度を有するゴムロールとからなる一対のロールを凹凸形状転写装置として用い、上記一方の面に溝形状が付与されたDX膜をこの凹凸形状転写装置に通し、連続したエンボス凸部に格子状の分断部を付与した。このときの転写条件は下記の条件であった。

10 DX膜の温度：常温

ロール温度：110℃

線速：10m/分、

プレス線圧：2000kPa

次いで、DX膜の他方の面にも上記と同様の操作を施し、連続した溝形状を有するエンボス凹部と分断部を有するエンボス凸部とからなるエンボスが両面に形成された合わせガラス用中間膜を得た。

（実施例25）

連続したエンボス凸部に格子状の分断部を付与したときの転写条件を下記の条件としたこと以外は実施例24の場合と同様にして、連続した溝形状を有するエンボス凹部と分断部を有するエンボス凸部とからなるエンボスが両面に形成された合わせガラス用中間膜を得た。

DX膜の温度：常温

ロール温度：120℃

線速：10m/分

25 プレス線圧：2000kPa

（実施例26）

エンボス凹部が連続した溝形状となる溝形状を付与したときの転写条件を下記の条件（1）とし、連続したエンボス凸部に格子状の分断部を付与したときの転写条件を下記の条件（2）としたこと以外は実施例24の場合と同様にして、連

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

47

れ、合わせガラス加工時のガラス板と中間膜との位置合わせ等が容易となり、取扱い作業性に優れることになる。

(3) 耐ブロッキング性

- 5 15 cm×15 cmに裁断した中間膜を2枚重ね合わせ、その上に13 Kgの重りを載せ、室温で24時間放置した後、引張り試験機を用いて、500 mm／分の引張り速度で180度角剥離試験を行い、剥離力を測定した。測定は5回行い、その平均値を剥離力（g）とした。この剥離力が小さいほど、中間膜同士が密着し難く、耐ブロッキング性に優れ、保管中やガラス板の間に中間膜を挟む際の取扱い作業性に優れることになる。

10 (4) ベークテスト

実施例21と同様にして、(a) 抜き脱気法及び(b) 減圧脱気法の2つの方法で予備圧着を行った後、本圧着を行って、合わせガラスを作製し、得られた合わせガラスにベークテストを施した。

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

49

表7から明らかなように、本発明による実施例24～26の合わせガラス用中間膜は、いずれも膜滑り性及び耐ブロッキング性に優れていた。これは保管時や合わせガラス加工時の取扱い作業性が優れていることを示している。

また、本発明による実施例24～26の合わせガラス用中間膜を用いて作製した実施例24～26の合わせガラスは、抜き脱気法における各予備圧着温度及び減圧脱気法における各予備圧着温度のいずれの場合についても、ベークテスト時の気泡による発泡枚数（不良枚数）が少なかった。これは、予備圧着工程における脱気性及びシール性が優れていたことを示している。

これに対し、エンボス凸部に分断部を付与しなかった比較例7の合わせガラス用中間膜を用いて作製した比較例7の合わせガラスは、抜き脱気法及び減圧脱気法において予備圧着温度が低い場合、ベークテスト時の気泡による発泡枚数（不良枚数）が多かった。これは、予備圧着工程におけるシール性に問題があり、従って脱気が不十分であったことを示している。また、予備圧着工程における製造条件に制約があることも示している。

15 （実施例27）

図20は本発明の中間膜の一例を示し、（a）はその平面図、（b）は側面図である。

図20に示したように、本発明の中間膜1は、押出成形によって成形された熱可塑性樹脂シートの両面に、図示しない、微細な凹凸からなる多数のエンボス3
20 が形成され、片面に凹溝2が形成され、凹溝2と熱可塑性樹脂シートの押出方向Xとが略平行に設けられている。

〔中間膜の製造〕

可塑化ポリビニルブチラール樹脂をシート状に押出成形して得られた熱可塑性樹脂シート（積水化学工業社製、商品名「エスレックフィルムDXN膜」、厚み
25 760 μ m）を、図20に示した凹溝2の形状に対応する三角柱の突起（高さ120 μ m、底辺150 μ m、間隔300 μ m）が連続して軸方向に形成され、突起以外の表面に、ランダムに凹凸模様が形成された金属ロールと、表面にランダムに凹凸模様が形成された45～75のJIS硬度を有するゴムロールとからなる一対のロールを凹凸形状転写装置として用い、上記熱可塑性樹脂シートをこの

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

51

(b) 減圧脱気法

中間膜を二枚の透明なフロートガラス板（縦30cm×横30cm×厚さ2mmで中央部に対し周辺部が1mm湾曲しているガラス）の間に挟み、はみ出た部分を切り取り、こうして得られた積層体をゴムバック内に移し、ゴムバックを吸引減圧系に接続し、外気加熱温度で加熱すると同時に−60kPa（絶対圧力16kPa）の減圧下で10分間保持し、積層体の温度（予備圧着温度）がそれぞれ70℃、80℃及び90℃となるように加熱した後、大気圧に戻して予備圧着を終了した。

上記（a）及び（b）の方法で予備圧着された積層体を、それぞれオートクレーブ中で、温度140℃、圧力1.3MPaの条件下に10分間保持した後、50℃まで温度を下げ大気圧に戻すことにより本圧着を終了して、合わせガラスを作製した。

上記で得られた合わせガラスに対して、実施例1と同様にしてベークテストを行った。

表 8

				実施例	比較例			
				27	8	9	10	
十点平均表面粗さ (μm)				35.5	37.8	40.2	64.2	
ベーク テスト 発泡した 枚数 (枚/100枚)	脱 気 法	温 度	70℃	1	4	3	14	
			80℃	1	2	4	8	
			90℃	0	1	2	11	
	減 圧 脱 気 法	温 度	70℃	0	0	1	1	
			80℃	0	1	0	2	
			90℃	1	0	1	0	

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

53

(比較例 15)

実施例 28 と同様にして、表面粗さ $30\text{ }\mu\text{m}$ のランダム形状のエンボスを有する中間膜を得た。次に、山状の溝を入れた鉄ロール表面を作製し、このロール表面を、上記のランダム形状のエンボスを有する中間膜表面へ形状転写を行い、深さ $55\text{ }\mu\text{m}$ 、幅 $60\text{ }\mu\text{m}$ の三角波状の溝で、溝間隔が $300\text{ }\mu\text{m}$ の中間膜を得た。

実施例及び比較例で得られた中間膜の性能（脱気性）を下記の方法で評価した。結果を表 9 に示した。

〔脱気性の評価〕

中間膜の両側から透明な 2 mm 厚みのガラス板で挟み、得られた合わせガラスを、表 9 に示した初期温度のゴムバック内に入れ、ゴムバックを吸引減圧系に接続し、減圧を開始する。減圧を 10 分間程保持した後、表 9 に示した到達温度まで加熱して、その後冷却して合わせガラスを取り出し、その発泡状態を観察した。なお、発泡なしを○、発泡ありを×として評価した。

15

20

25

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

55

表 9 から明らかなように、本発明による実施例の中間膜は、減圧初期温度を高くし、到達温度を低くすることができて、予備圧着工程での脱気性に優れている。

産業上の利用可能性

- 5 本発明は、上述の構成よりなるので、エンボスの配置や間隔が規則的な場合でもモアレ現象の出現がないので、裁断時や合わせ加工時の作業性が良好であり、また、予備圧着工程での脱気性に優れる合わせガラス用中間膜を提供することができる。

- 10 本発明は、また、上記構成よりなるので、予備圧着工程において脱気開始温度を厳密に制御する必要がないにもかかわらず、周縁部シール先行現象を発生することがなく、優れた脱気性を発揮する合わせガラス用中間膜を提供することができる。更に、膜の自着力を抑えることができるので、膜取扱い性に優れている。

- 15 本発明は、更に、上述の構成よりなるので、保管中のブロッキング性や合わせ加工の際の取扱い作業性がよいことはもとより、予備圧着工程での脱気性及びシール性に優れる合わせガラス用中間膜を提供することができる。従って、特に面積が広い合わせガラスや曲率が大きい合わせガラスを製造する場合や合わせガラスの生産性を上げる場合であっても、脱気、及び、ガラス板と中間膜とのシールのいずれも充分に行われ、オートクレーブ内で加熱加圧して本圧着する際に、シール不良部から加圧空気が侵入して、ガラス板と中間膜との間に気泡が発生する
20 ような品質不良が改善され、特に透明性が優れた合わせガラスを得ることができる。

- 25 また、本発明の合わせガラス用中間膜によれば、予備圧着工程において広い温度範囲で良好な脱気及びシールが可能となり、予備圧着温度の管理が容易となり合わせ加工の作業性が著しく向上するという利点がある。多様なユーザーの多様な加工条件にも簡便かつ効率的に対応することができる。

従って、本発明の合わせガラス用中間膜によれば、合わせガラス作製時の作業性に優れると共に、過酷な条件下においても気泡の発生による品質不良を殆ど生じない高品質の合わせガラスを得ることができる。

本発明の合わせガラス用中間膜を用いて作製された合わせガラスは、過酷な条

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

57

請求の範囲

1. 熱可塑性樹脂シートの両面に凹部と凸部とからなるエンボスが形成された合わせガラス用中間膜であって

- 5 一方の面のエンボスの配置間隔と他方の面のエンボスの配置間隔とが異なるように形成されていることを特徴とする合わせガラス用中間膜。

2. 少なくとも片面の凹部が連続するように形成されていることを特徴とする請求の範囲第1項記載の合わせガラス用中間膜。

10

3. 少なくとも片面の凹部の底辺が連続するように形成されていることを特徴とする請求の範囲第1又は2項記載の合わせガラス用中間膜。

4. 一方の面のエンボスの配置間隔(L1)と、他方の面のエンボスの配置間隔

15 (L2)とは、 $(L1) < (L2)$ の関係にあり、

一方の面の凸部の配置位置の前後 $(L1 \times 0.25)$ の範囲内に、他方の面の凸部が存在する割合は、一方の面の凸部の数の50%以下である

ことを特徴とする請求の範囲第1、2又は3項記載の合わせガラス用中間膜。

- 20 5. 少なくとも片面の凹部は、刻線状の模様を形成していることを特徴とする請求の範囲第1、2、3又は4項記載の合わせガラス用中間膜。

6. 熱可塑性樹脂シートの両面に凹部と凸部とからなるエンボスが形成された合わせガラス用中間膜であって、

- 25 少なくとも片面の前記凹部は、底辺が連続した溝形状を有しており、かつ、
同一面の前記凸部は、頭頂が平面形状を有している
ことを特徴とする合わせガラス用中間膜。

7. 更に、凸部の頭頂の平面形状の上に微細な凹部及び凸部が形成されているこ

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

59

16. 熱可塑性樹脂シートの両面に凹部と凸部とからなるエンボスが形成された
合わせガラス用中間膜であって、

少なくとも片面の前記凹部は、溝形状を有しており、同一水準になく、

少なくとも片面は、表面粗さ (R_z) と陰原型の表面粗さ (R_{z_v}) との比が $R_{z_v} / R_z \geq 0.25$ である

5 $R_{z_v} / R_z \geq 0.25$ である

ことを特徴とする合わせガラス用中間膜。

17. 溝形状は、線状に形成されていることを特徴とする請求の範囲第16項記
載の合わせガラス用中間膜。

10

18. 溝形状は、格子状に形成されていることを特徴とする請求の範囲第16項
記載の合わせガラス用中間膜。

19. 熱可塑性樹脂シートの両面に凹部と凸部とからなるエンボスが形成された
15 合わせガラス用中間膜であって、

少なくとも片面の前記凹部は、連続した溝形状を有しており、

同一面の前記凸部は、溝形状の分断部を有しており、かつ、

前記分断部は、溝形状の底辺が前記凹部の連続した溝形状の底辺と同一水準にな
いことを特徴とする合わせガラス用中間膜。

20

20. 凹部の溝形状と前記凸部の分断部の溝形状とが格子状を形成していること
を特徴とする請求の範囲第19項記載の合わせガラス用中間膜。

21. 凹部の溝形状と前記凸部の分断部の溝形状とがランダムな形状を形成して
25 いることを特徴とする請求の範囲第19項記載の合わせガラス用中間膜。

22. 凸部の分断部の溝形状の深さが一定であることを特徴とする請求の範囲第
19、20又は21項記載の合わせガラス用中間膜。

WO 01/02316

PCT/JP00/04383

61

21、22、23、25、26、27又は28項記載の合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させてなることを特徴とする合わせガラス。

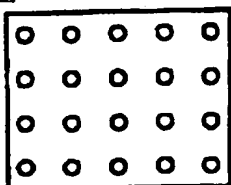
WO 01/02316

PCT/JP00/04383

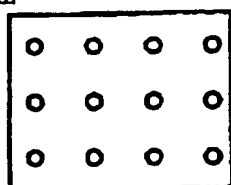
2 / 10

図 3

表面



裏面



断面



図 4

表面



裏面



断面



WO 01/02316

PCT/JP00/04383

4 / 10

図 7

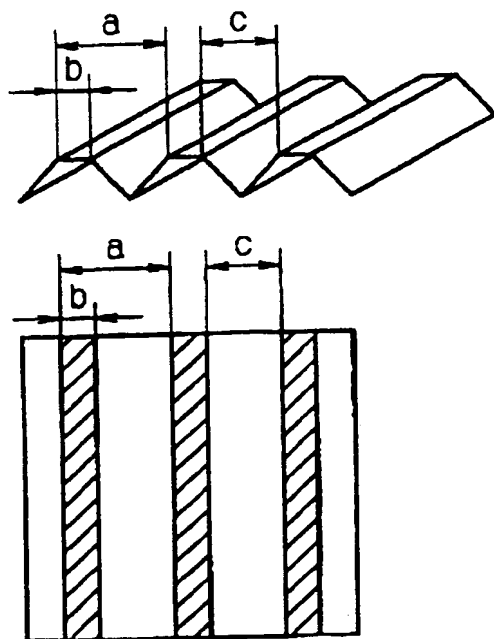
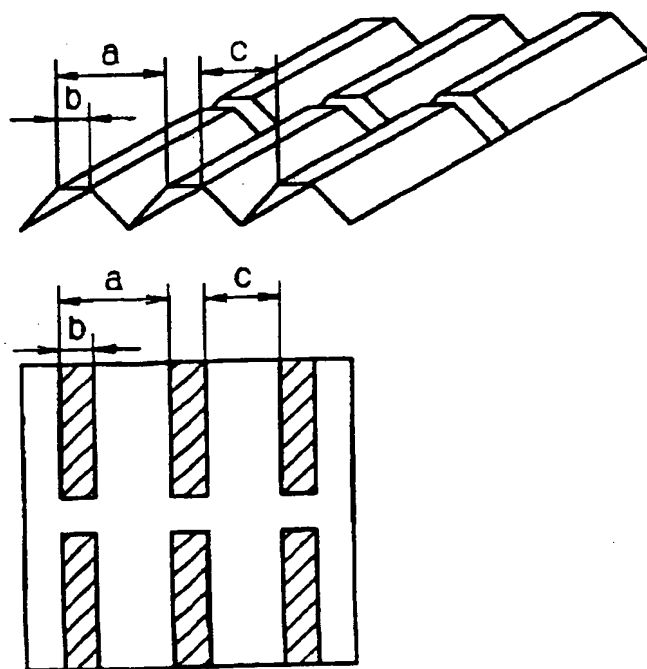


図 8



WO 01/02316

PCT/JP00/04383

6 / 10

图 11

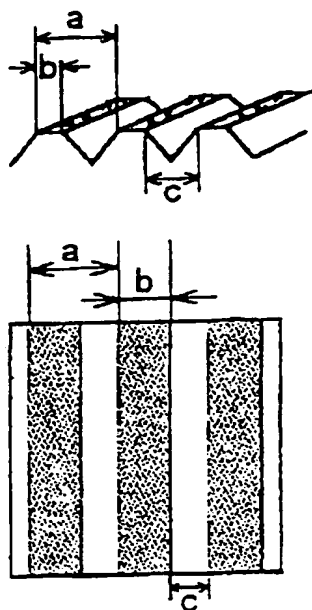
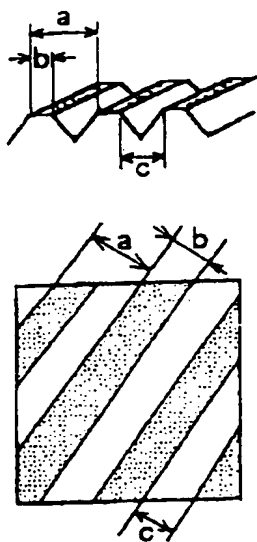


图 12



WO 01/02316

PCT/JP00/04383

8 / 10

図 15

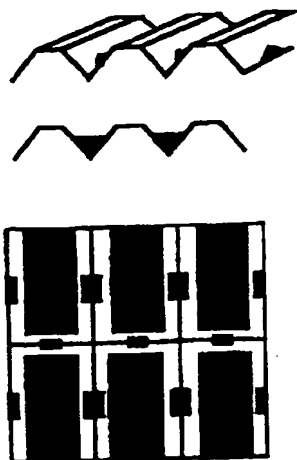
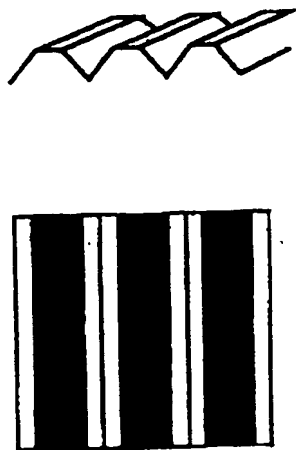


図 16

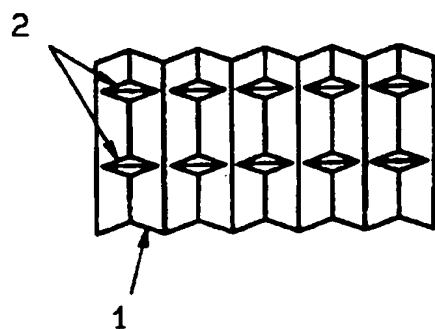


WO 01/02316

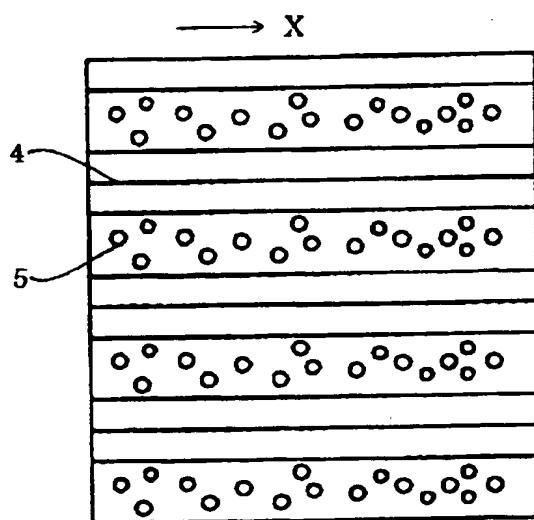
PCT/JP00/04383

10 / 10

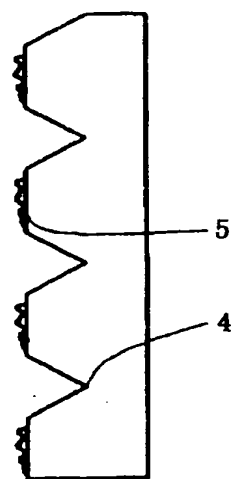
19



20



(a)



(b)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/04383

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
	Claims	
Y A	JP, 6-127983, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 10 May, 1994 (10.05.94), Claims (Family: none)	18-20 1-17, 21-29
PY A	JP, 2000-7390, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 11 January, 2000 (11.01.00), Claims (Family: none)	6-12 1-5, 13-29
A	JP, 2000-256043, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 19 September, 2000 (19.09.00), Claims (Family: none)	1-29
A	JP, 2000-256044, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 19 September, 2000 (19.09.00), Claims (Family: none)	1-29

国際調査報告

国際出願番号 PCT/J P.00/04383

C (続き). 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	J P, 9-295839, A (積水化学工業株式会社) 18. 11 月. 1997 (18. 11. 97) 特許請求の範囲, 【001 7】, 図1 (ファミリーなし)	19-23 1-18, 24-29
Y	WO, 95/19885, A1 (MONSANTO COMPANY) 27. July. 1995 (27. 07. 95) 特許請求の範囲 & E P, 7416 40, A1&US. 5455103, A&J P, 9-50807 8, A, 特許請求の範囲	1-29
Y A	J P, 6-127983, A (積水化学工業株式会社) 10. 5 月. 1994 (10. 05. 94) 特許請求の範囲 (ファミリーな し)	18-20 1-17, 21-29
PY A	J P, 2000-7390, A (積水化学工業株式会社) 11. 1 月. 2000 (11. 01. 00) 特許請求の範囲 (ファミリーな し)	6-12 1-5, 13-29
A	J P, 2000-256043, A (積水化学工業株式会社) 1 9. 9月. 2000 (19. 09. 00) 特許請求の範囲 (ファミ リーなし)	1-29
A	J P, 2000-256044, A (積水化学工業株式会社) 1 9. 9月. 2000 (19. 09. 00) 特許請求の範囲 (ファミ リーなし)	1-29

This Page Blank (uspto)